

Sur les impulsions d'ionisation
et le mécanisme de transport de charges
dans le diamant

THÈSE

PRÉSENTÉE A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL
POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

PAR

HANS ESS

PHYSICIEN DIPLOMÉ E. P. F.

MARS 1951

BALE
IMPRIMERIE E. BIRKHÄUSER & Cie, S.A.
1951

Sur les impulsions d'ionisation
et le mécanisme de transport de charges
dans le diamant

THÈSE

PRÉSENTÉE A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL
POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

PAR

HANS ESS

PHYSICIEN DIPLOMÉ E.P.F.



BALE
IMPRIMERIE E. BIRKHÄUSER & Cie, S.A.
1951

UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL

FACULTÉ DES SCIENCES

La Faculté des sciences de l'Université de Neuchâtel
sur le rapport de MM. les professeurs J. ROSSEL, CH.-G.
BOISSONNAS et A. HOURIET, autorise l'impression de la
présente thèse intitulée:

*« Sur les impulsions d'ionisation et le mécanisme de
transport de charges dans le diamant »*

sans exprimer d'opinion sur les propositions qui y
sont contenues.

Neuchâtel, le 24 avril 1951.

Le Doyen:

Prof. F. FIALA.



Tirage à part de Helvetica Physica Acta, Volumen XXIV,
Fasciculus 3, 1951.

Sur les techniques d'ionisation et le développement de l'énergie dans le monde

de H. B. G.

A MON PÈRE EN TÉMOIGNAGE DE RECONNAISSANCE

Le présent travail a été exécuté pendant les années 1948 à 1951 à l'Institut de Physique de l'Université de Neuchâtel sous la direction de Monsieur le professeur JEAN ROSSEL.

Je tiens à lui exprimer ici ma très vive reconnaissance pour l'intérêt qu'il a constamment porté à mon travail et pour l'aide qu'il m'a donnée, tout spécialement pour l'interprétation des résultats obtenus.

Neuchâtel, mars 1951.

Sur les impulsions d'ionisation et le mécanisme de transport de charges dans le diamant

par H. Ess.

Sommaire. Les impulsions de courant produites à travers le diamant par les particules ionisantes sont étudiées sur deux spécimens de cristaux compteurs, du double point de vue de leur enregistrement et du mécanisme du transport des charges.

1° Pour les α comme pour les γ , la distribution d'amplitudes est continue, la valeur limite étant proportionnelle à l'énergie entre 0 et au moins 5,3 MeV pour les α , uniquement au-dessous de 0,5 MeV pour les γ . L'énergie apparente requise par électron libéré varie de point en point et reste supérieure à 25 eV pour les α ; pour les γ , elle est de l'ordre de 18 eV. Pour des champs appliqués supérieurs à 2000 V/cm le rendement de détection atteint 100% pour les α , mais ne dépasse pas 0,5% soit 30% du rendement théorique pour les γ . Ces résultats suggèrent une structure du cristal en domaines d'efficacité de dimensions linéaires de l'ordre de 0,5 mm.

2° Dans des conditions de charge d'espace nulle, on détermine, à partir des courbes de saturation, les grandeurs $\mu\tau$ et $J = eE\alpha_{\gamma}/Q_0$, aux températures de 290, 200 et 90° K, séparément pour les électrons et les trous positifs. Les variations constatées indiquent l'existence de deux types de pièges dont la concentration ($\sim 10^{16}$ cm⁻³) et l'efficacité varient avec T de façon différente. Pour l'un des cristaux, la mobilité μ semble nettement influencée par les impuretés aux basses températures tandis que l'autre spécimen est caractérisé par une prédominance de dislocations dont l'effet masque les propriétés des domaines homogènes.

Un effet de multiplication électronique (pré-disruption) est observé aux températures $\leq 200^\circ$ K pour des champs ≥ 5000 V/cm. Une discussion semi-quantitative indique que ce phénomène doit être imputable à la ionisation de centres d'impuretés par les électrons accélérés.

Introduction.

Le diamant a été utilisé pour la première fois avec succès comme détecteur de radiations ionisantes par WOOLRIDGE, AHEARN et BURTON¹⁾, après quelques essais infructueux de VAN HEERDEN²⁾. Un grand nombre de travaux expérimentaux ont suivi, dont les résultats ont été recueillis par HOFSTADTER³⁾. Comme travaux plus récents, citons entre autres ceux de WILLARDSON et DANIELSON⁴⁾ de FREEMANN et VAN DER VELDEN⁵⁾ et de McKAY⁶⁾.

Le phénomène mis en jeu est intéressant non seulement pour la technique de la détection de ces radiations, mais aussi du point de

vue des propriétés électriques des cristaux. L'étude des impulsions d'ionisation permet, à l'aide d'un modèle théorique pour le processus de conduction faisant intervenir les propriétés du cristal imparfait, de déterminer le travail d'ionisation moyen, la mobilité électronique et celle des trous positifs ainsi que la densité des imperfections du réseau agissant comme pièges à électrons.

La production de charges libres par ionisation par rayons α , β ou γ ne mettant en jeu qu'un nombre très faible d'électrons (de l'ordre de 10^4 à 10^5 par processus) permet d'éviter facilement la formation de charges d'espace, ce qui donne à la méthode un avantage réel sur les mesures de conductibilité photoélectrique (GUDDEN, POHL et autres⁷), par effet HALL (KLICK et MAURER⁸) ou par injection d'électrons accélérés artificiellement (McKAY⁹⁶).

Cependant la charge libérée par particule ionisante étant faible, elle ne peut être détectée que pour les cristaux dans lesquels la mobilité électrique est suffisante et dont la densité des trappes n'est pas trop élevée.

Le but de ce travail est d'étudier d'une part les propriétés du diamant comme compteur nucléaire et d'autre part le mécanisme du transport de charges. Comme détecteur nucléaire la sensibilité aux différentes radiations, c'est-à-dire la relation entre charge mesurée et énergie, et les effets de saturation qui peuvent intervenir sont des données importantes. Au point de vue du mouvement des charges dans le cristal, l'étude de la mobilité des électrons et des trous positifs à différentes températures, conjointement avec celle de la vie moyenne, peut jeter quelque lumière sur le mécanisme de transport encore mal connu dans les cristaux de valence. Dans la mesure du possible, nous essayerons de discuter les résultats expérimentaux à la lueur des données théoriques actuelles applicables aux monocristaux homogènes, bien qu'une telle comparaison soit difficile par suite des effets nombreux dus aux irrégularités et défauts plus ou moins localisés dans le cristal.

Partie I: Méthode et dispositifs expérimentaux.

1. Principe des mesures.

Les impulsions produites lors de la pénétration de radiations ionisantes dans le cristal sont amplifiées et rendues visibles par un oscillographe cathodique monté en synchroscope. Chaque impulsion fait apparaître sur l'écran un trait horizontal dont la position verticale correspond à l'amplitude.

L'écran est photographié, et en passant la plaque au photomètre dans la direction verticale on obtient une courbe de noircissement qui est le spectre cherché. Ce procédé a l'avantage d'être rapide et fournit la distribution des amplitudes avec une précision suffisante pour notre étude.

2. Cristaux.

Nous avons examiné 75 cristaux de diamant, dont 60 étaient parfaitement transparents et incolores*). Deux exemplaires seulement fournissaient des impulsions mesurables lors de l'irradiation par rayons α ou γ . Deux autres permettaient de constater le phénomène; toutefois l'amplitude était à peine supérieure au bruit de fond des amplificateurs.

Les cristaux examinés étaient d'origines très variées. La lumière fluorescente émise lors de l'irradiation par rayons ultraviolets variait entre le lilas, le bleu-violet et le vert clair, de l'intensité vive jusqu'à l'obscurité complète. Les deux exemplaires utilisables pour nos mesures se comportaient très différemment l'un de l'autre: tandis que la fluorescence du premier cristal était d'un violet à peine visible, celle du second était bleu-clair et intense. Ni l'un ni l'autre des deux cristaux ne se distinguait des autres par des effets de biréfringence colorée au microscope à polarisation. D'autre part la mesure de la transmission en ultra-violet a donné les résultats suivants: Cristal n° 1, absorption pratiquement totale au-dessous de 2900 Å, cristal n° 2 au-dessous de 2950 Å.E. tandis qu'un spécimen typique des cristaux non compteurs absorbe complètement au-dessous de 3000 Å.E. déjà. Il semble donc que les critères de fluorescence et biréfringence proposés par HOFSTADTER¹⁰⁾ ne sont pas confirmés par nos observations, tandis que celles-ci supportent dans une certaine mesure le critère de transparence en ultra-violet indiqué par FRIEDMANN, BIRKS et GAUVIN¹¹⁾.

Le cristal n° 1 était de forme irrégulière, mais possédait deux faces parallèles, taillées et polies, de 25 mm² et 10 mm² environ et de 3,2 mm de distance, qui portaient les électrodes. A part une petite inclusion jaune-orange en dehors des électrodes, ce diamant était parfaitement incolore et transparent.

Le cristal n° 2, un diamant de bijouterie d'aspect identique, possédait une surface plane de 7 mm de diamètre. L'inclinaison des facettes centrales opposées étant faible, nous les avons utilisées comme seconde électrode distante de 2,0 mm de la première.

*) Nous remercions les maisons Vögeli & Wirz à Bienne et H. Weber à Zurich de nous avoir aimablement mis ces diamants à disposition.

Comme électrodes, nous avons utilisé une couche de $0,5 \text{ mg/cm}^2$ d'aluminium, évaporé dans le vide, ce qui correspond à une perte d'énergie inférieure à 1% pour les particules α incidentes. Pour l'électrode non irradiée, nous avons dans certains cas remplacé l'aluminium évaporé par du graphite colloïdal sans observer de modifications dans le comportement du cristal.

3. Préparations radioactives.

Pour toutes les mesures avec particules α , nous avons utilisé des sources de Polonium ($E_\alpha = 5,30 \text{ MeV}$), dont le spectre d'énergie a été contrôlé avec une chambre d'ionisation. La largeur expérimentale de la raie était inférieure à 10% de l'énergie totale.

Pour le premier porte-cristal à distance variable, quelques mm^2 de cette feuille étaient collés à l'extrémité d'une vis. Pour le second support, une plaque carrée de 2 cm^2 de laiton, dans laquelle étaient tracées deux raies perpendiculaires de 20μ environ de profondeur, était polluée au point d'intersection par une quantité minime de Po. La plaque de laiton était ensuite recouverte par vaporisation d'une couche d'aluminium identique à celle des électrodes et protégeant la préparation.

Comme sources de radiation γ , nous avons employé

- 1^o une préparation de Cu^{64} émetteur β^+ et fournissant pratiquement la radiation d'annihilation seule, soit deux quanta γ d'une énergie de $0,51 \text{ MeV}$ par β^+ ;
- 2^o environ $1,4 \text{ mC}$ de Co^{60} , qui émet deux raies γ de $1,1$ et $1,3 \text{ MeV}$;
- 3^o une préparation de Ra de $0,5 \text{ mC}$ dont le spectre, très complexe, présente des dominantes dont l'énergie moyenne se place vers 2 MeV environ;
- 4^o une préparation de dépôt actif de Thorium agissant par la raie γ de $2,6 \text{ MeV}$.

Tandis que les préparations 1^o à 3^o agissaient de l'extérieur, la quatrième était placée à proximité immédiate du cristal pour raison d'intensité.

4. Porte-cristal.

Les deux porte-cristal utilisés sont représentés schématiquement dans la fig. 1. La plaque de base B , isolée par rapport à la masse M , est portée à haute tension. Pour le porte-cristal I, elle est munie d'une ouverture variable agissant comme diaphragme pour les particules α . Le barreau métallique, qui descend dans le réfrigérant, assure le contact thermique et contient la vis qui porte la préparation de Po. Dans l'espace E se trouve un clapet à l'aide duquel on peut arrêter les particules α sans interrompre la haute tension.

Dans le second porte-cristal fermé par le couvercle *C* la plaque polluée est posée sur la plaque de base. Le contact thermique se fait ici en noyant le tout dans le réfrigérant jusqu'au niveau *N* et en faisant passer dans l'intérieur un faible courant d'hydrogène séché.

La plaque *G* pressée contre le cristal *D* et le fil de cuivre mince *F* assurent le contact électrique entre la face non irradiée et l'entrée du préamplificateur. Le tube de maillechort *T* sert à la fois comme blindage et comme support.

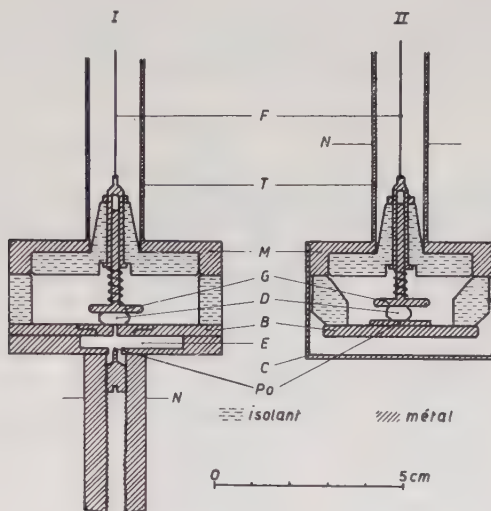


Fig. 1.
Porte-cristal.

Dans les deux cas, une petite lampe à incandescence permet d'éliminer les charges d'espace s'accumulant petit à petit à l'intérieur du cristal. Son action est très efficace et consiste probablement dans le dépiégeage, par la radiation lumineuse émise, des électrons immobilisés.

5. Dispositif électrique.

La fig. 2 représente le schéma de principe des amplificateurs et de l'oscilloscope utilisés.

Les impulsions sont d'abord amplifiées par un préamplificateur situé immédiatement à la suite du porte-cristal. Il se compose d'un tube 6C6 sélectionné, travaillant dans des conditions spéciales (4 V de chauffage, montage en triode, 30 V de tension anodique) pour donner un rapport signal: bruit maximum, et d'un étage inverseur avec des résistances égales dans la cathode et dans l'anode, ce qui

permet de changer la polarité à l'aide d'un commutateur. Nous pouvons ainsi observer des impulsions des deux signes en attaquant l'étage suivant avec des amplitudes toujours positives. Nous avons pris un soin particulier à ramener le ronflement et l'effet microphonique à un minimum.

Les impulsions d'étalonnage, produites par court-circuit d'une résistance, sont appliquées pendant la mesure même à l'entrée du préamplificateur à travers une capacité de $0,593 \pm 0,002$ pF; l'étalonnage se fait ainsi directement en unités de charge. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec un contact à mercure. L'amplitude des impulsions est donnée par la valeur du courant qui traverse les résistances bobinées avec une précision de $10/100$ et peut être variée

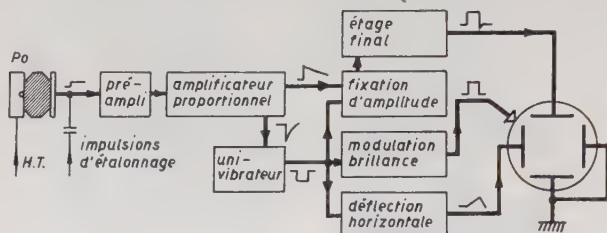


Fig. 2.

Schéma de principe.

entre 0,025 et 30 mV. La courbe d'étalonnage permet d'éliminer toutes les déformations dues à une amplification non linéaire, à la courbure de l'écran fluorescent et éventuellement au photomètre. Cette courbe a été relevée à plusieurs reprises pour tenir compte de variations éventuelles de réponse d'amplification.

La sortie du préamplificateur agit sur un amplificateur proportionnel à contre-réaction, d'amplification variable entre 3000 et 50000 fois en 5 positions fixes. Une première sortie de l'amplificateur proportionnel attaque par l'intermédiaire d'une ligne de retard et d'un étage final les plaques de déviation verticale de l'oscilloscope.

Une seconde sortie, munie d'un discriminateur, commande l'uni-vibrateur du synchroscope, qui agit lui-même à la fois sur les étages de contrôle de brillance, de déflexion horizontale et de fixation d'amplitude. Ce dernier consiste en une capacité que chaque impulsion charge, à travers une diode, à sa valeur de pointe. Le potentiel est ainsi maintenu constant pendant la durée de l'impulsion, ce qui produit sur l'écran un trait horizontal. Pour éviter l'en-

tassement, la capacité est déchargée à travers une penthode, débloquée par le retour de l'univibrateur.

Cet étage de redressement a en outre l'avantage de réduire de 30% environ la fluctuation d'amplitude due au bruit de fond.

L'alimentation de ces appareils en courant anodique est assurée par un redresseur à stabilisation électronique qui réduit l'ondulation à une valeur inférieure à 2 mV. Le chauffage des tubes se fait en courant continu pour éviter tout ronflement induit.

6. Enregistrement photographique.

a) Spectres d'impulsions.

Le synchroscope permet de photographier le spectre d'impulsions, auquel on superpose des impulsions artificielles d'étalonnage. Chaque spectre comprenait au total 400 à 1500 impulsions. Ce nombre

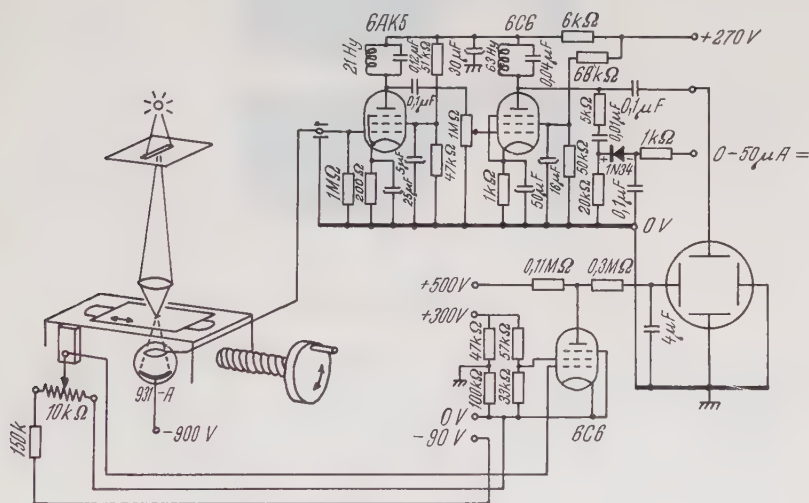


Fig. 3.

Schéma du photomètre.

est assez faible pour éviter l'influence de la charge d'espace tendant à s'accumuler dans le cristal et assez grand pour que l'erreur statistique soit acceptable.

Un objectif d'ouverture 1:1,5 projette l'image de l'écran sur une plaque Orthochrome 32° Sch., qui est ensuite développée dans un

révélateur à grain fin pour films à rayons X, choisi après quelques essais préliminaires.

b) Photomètre.

Les clichés des spectres d'impulsions ainsi obtenus sont passés au photomètre, qui en détermine la courbe de noircissement. Ce photomètre, destiné à la détermination rapide d'un grand nombre de spectres, (voir fig. 3) a été construit sur une machine à diviser.

La lampe d'éclairage de la fente (lampe à incandescence ou lampe au Néon) étant alimentée en courant alternatif, le flux lumineux et par conséquent le courant de la cellule (tube multiplicateur 931-A) contiennent une composante alternative de 100 c/s

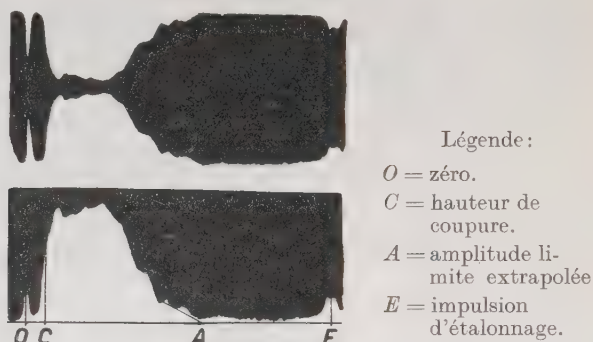


Fig. 4.

Spectres d'impulsions.

amplifiée par deux étages à circuits accordés. Nous évitons ainsi les inconvénients des amplificateurs à courant continu et nous supprimons en même temps la majeure partie du bruit de fond de la cellule photoélectrique. La sortie de l'amplificateur est reliée aux plaques verticales d'un tube à rayon cathodique.

Au plateau mobile est fixé le curseur d'un potentiomètre. Son potentiel varie linéairement avec la position du plateau. Appliqué à un amplificateur à courant continu, il donne la tension de déflexion horizontale du spot. Lors du passage d'une plaque sur le photomètre la courbe de transparence apparaît sur l'écran comme enveloppe des vibrations de 100 c/s (voir fig. 4). Il nous suffit d'en photographier la partie supérieure par exemple pour avoir le spectre cherché (impulsions ou étalonnage).

Partie II: Propriétés du diamant comme compteur.

1. Particules α .

Pour l'emploi du diamant comme compteur à particules α , on peut placer la source radioactive directement sur une électrode. Cette disposition est avantageuse pour les sources faibles, l'angle solide des particules enregistrées étant maximum, c'est-à-dire 2π . Cependant, comme l'amplitude des impulsions varie énormément d'un point à l'autre de la surface, il est à peu près impossible de repérer un endroit utilisé une fois pour y faire une seconde mesure dans les mêmes conditions. Cette méthode n'est donc guère applicable pour la comparaison de différentes sources.

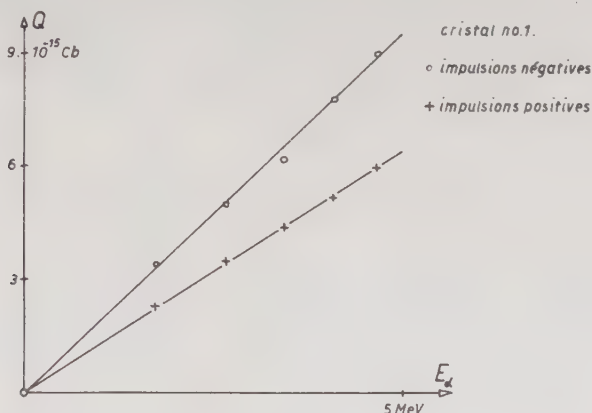


Fig. 5.

Charge mobile en fonction de l'énergie de la particule α .

Un autre arrangement consiste à disposer un diaphragme fixe devant l'électrode à irradier, la source se trouvant à une distance bien déterminée. L'angle solide est plus faible ainsi que le nombre de particules incidentes. De plus, celles-ci perdent une partie de leur énergie — déterminable d'ailleurs — le long du trajet dans l'air. Les particules α , dont le spectre d'énergie consiste en une seule raie très étroite, produisent dans le diamant, dans la plupart des cas, des impulsions d'amplitude très variable. Le maximum du spectre n'apparaît pas, en général (nous ne l'avons observé nettement que dans une seule mesure), mais il est possible de déterminer, par extrapolation du flanc, une amplitude limite qui, à l'erreur de mesure près, a été trouvée proportionnelle à l'énergie des particules α incidentes. Le facteur de proportionnalité dépend, bien entendu, de l'endroit découvert par le diaphragme. Il a été

déterminé à l'aide d'une source de Polonium placée à distance variable du cristal. La fig. 5 représente l'amplitude des impulsions (valeur limite) obtenues pour l'irradiation du cristal n° 1 par une source de Po, en fonction de l'énergie des particules incidentes. La perte d'énergie due au parcours dans l'air a été calculé d'après les graphiques de LIVINGSTONE et BETHE¹²). Le cristal n° 2 fournit un résultat semblable.

Ceci indique qu'il est possible de comparer les énergies maxima des particules α émises par des sources différentes, mais non de déceler plusieurs raies d'une même source.

Quant à l'efficacité de détection nous l'avons déterminée par comparaison avec le nombre de particules α mesuré dans une chambre d'ionisation à air, cylindrique et disposé à la place du diamant avec son axe parallèle au faisceau de particules. L'efficacité ainsi déterminée atteint 100% pour des champs supérieurs à 2000 V/cm.

2. Radiation γ .

Le compteur à diamant enregistre également les radiations γ . Cependant comme le carbone est un élément léger, l'efficacité est relativement faible.

Nous avons étudié ce rendement au moyen d'une source de Co^{60} que nous avons calibrée par compteur à scintillations à cristal de NaI(Tl) (avec multiplicateur RCA 5819) sur la base du rendement théorique de l'effet Compton.

On trouve ainsi pour le cristal n° 2 (volume 70 mm³) un rendement absolu de 0,5% (20 coups par sec. à 6000 V/cm pour 4000 γ incidents par sec.). Cependant l'efficacité relative à l'effet Compton théorique maximum est de 30%. La perte est due pour une part à la hauteur de coupure des impulsions ($\sim 1/15$ de l'amplitude maximum), effet accentué par l'étalement vers le bas de la distribution d'amplitudes.

La production de la charge mobile se fait en deux étapes: Un quantum γ d'énergie $h\nu$ produit, avec une certaine probabilité, un électron Compton qui possède, au maximum, l'énergie

$$E_{\max.} = \frac{h\nu}{1 + \frac{m_0 c^2}{2h\nu}}.$$

Celui-ci libère, le long de son parcours dans le cristal, des charges secondaires susceptibles de fournir une impulsion. Avec les radiations γ , nous nous attendons à priori à un spectre continu d'impul-

sions par suite même du spectre continu des électrons Compton, et du fait que la production des électrons étant répartie dans tout le volume, une perte d'énergie à la limite du cristal, variable de cas en cas, est inévitable.

Cependant, l'amplitude maximum des impulsions enregistrées devrait être proportionnelle à l'énergie maximum des électrons Compton, tant que leur trajet est suffisamment petit par rapport aux dimensions du cristal. Celui-ci varie pour les différentes sources de quelques dixièmes à plusieurs mm; il est donc comparable à l'épaisseur du cristal ~ 2 mm, ce qui laisse prévoir déjà une déviation de la linéarité. Le tableau I donne les valeurs de l'énergie des rayons γ , celle des électrons d'énergie max., le parcours maximum dans le diamant et la charge limite observée pour les 4 sources à notre disposition.

Tableau I.

Energies, parcours et charges pour les sources γ .

Source	$E_{h\gamma}$	$E_{\max}$	R_{Diamant}	$Q_{\text{mesuré}} \times 10^{15} \text{ Cb}$
Cu ⁶⁴	0,5 MeV	0,34 MeV	0,3 mm	4,5
Co ⁶⁰	1,2 MeV	1,0 MeV	1,2 mm	6,8
Ra environ	2 MeV	1,8 MeV	2,4 mm	7,6
Th	2,6 MeV	2,4 MeV	3,4 mm	7,6

Les valeurs limites des charges mesurées pour les différentes sources (voir courbes de saturation fig. 11, page 263) sont reportées en fonction de l'énergie maxima des électrons Compton dans la fig. 6. Les résultats obtenus pour le cristal n° 1 sont analogues.

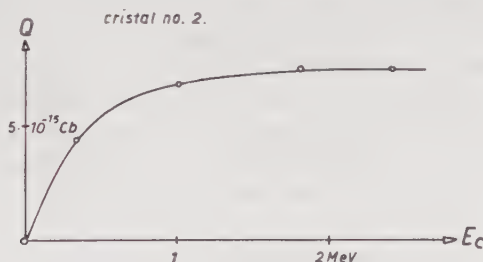


Fig. 6.

Charge en fonction de l'énergie des électrons Compton.

La courbe de la fig. 6 montre qu'une proportionnalité entre l'énergie de l'électron Compton et l'impulsion produite, ne semble exister que pour les énergies inférieures à 0,5 MeV dans notre

cristal. En admettant une ionisation uniforme le long de la trajectoire de

$$4,5 \cdot 10^{-15} \text{ Cb}/0,3 \text{ mm (valeur pour Cu}^{64}\text{)}$$

on devrait s'attendre à une valeur maximum possible de Q correspondant à la dimension moyenne du cristal de 2,5 mm environ soit $Q = 35 \cdot 10^{-15} \text{ Cb}$. Cette valeur est 4,5 fois supérieure à la charge limite observée (pour Ra et Th) ce qui semble indiquer l'existence à l'intérieur du cristal de « zones d'efficacité » pour la production de charges mobiles ne dépassant pas 0,5 mm.

3. *Radiation β .*

Nous n'avons pas effectué de mesures avec des sources de radiation β , mais les résultats obtenus pour les rayons α et γ laissent entrevoir les possibilités du cristal — mis à part un effet de surface éventuel lors de la pénétration des β de l'extérieur et qu'il resterait à étudier.

4. *Effets de polarisation.*

Une difficulté inhérente au compteur à diamant est l'accumulation de charges à l'intérieur du cristal, charges produisant un champ électrique supplémentaire non mesurable. Celui-ci, en agissant sur les charges en mouvement, a pour effet de diminuer au bout d'un certain temps l'amplitude des impulsions observées et finalement le nombre enregistré par sec. Le nombre total d'impulsions produisant une diminution mesurable de l'amplitude dépend évidemment des conditions de l'expérience; pour les particules α nous l'avons trouvé variable, entre 150 et 10000 environ, suivant les cas. L'irradiation du cristal par la lumière visible avec composante rouge (à champ extérieur nul) élimine cette charge d'espace en une fraction de seconde, ce qui ramène l'amplitude des impulsions à leur valeur initiale. Nos spectres, qui contiennent chacun environ 500 à 1500 impulsions, ont été obtenus en interrompant la mesure une ou plusieurs fois.

Pour la radiation γ , la polarisation se produit beaucoup moins rapidement, car la production de charges mobiles et leur piégeage se répartit sur tout le volume du cristal.

À basse température comme on peut s'y attendre, nous avons observé que l'effet de charge d'espace se manifestait plus rapidement qu'à température ordinaire, ce qui imposait des interruptions plus fréquentes de la mesure.

En utilisant le diamant comme détecteur de radiations ionisantes, il est donc nécessaire d'interrompre la mesure après quelques centaines d'impulsions, ce qui est prohibitif pour les préparations de forte activité. Une autre possibilité que nous n'avons pas expérimentée consisterait à prévoir un éclairage intense du cristal en lumière de λ suffisamment grand (rouge ou infrarouge⁵), ce qui élimine la charge d'espace (libération des électrons capturés dans les pièges) sans produire, semble-t-il, d'effet photoélectrique gênant.

Partie III: Mouvement des charges dans le cristal.

1. *Le modèle de HECHT.*

Il ressort de la partie II de ce travail que le diamant n'est pas très avantageux comme détecteur quantitatif de radiations ionisantes, vu la difficulté de détermination de leur énergie et les autres inconvénients mentionnés. Les mesures effectuées ont surtout un intérêt quant à la détermination du mécanisme de transport des charges à l'intérieur du cristal.

Il existe certes d'autres méthodes susceptibles de fournir des renseignements à ce sujet, telles les mesures par effet Hall ou par effet photoélectrique; le premier permettant la détermination de la mobilité μ des charges, le deuxième celle du produit de la mobilité par la durée de vie moyenne τ . Mais ces deux méthodes ont le grand désavantage de nécessiter pour le transport du courant des charges relativement grandes. Celles-ci, immobilisées dans les pièges à électrons, forment une charge d'espace difficile à éviter et donnent naissance à un champ électrique intérieur, qui s'oppose au champ appliqué extérieurement. De plus, il est impossible, dans le cas de l'effet Hall et de la mesure photoélectrique conventionnelle, de séparer le mouvement des charges négatives de celui des charges positives. Au contraire, la charge libérée par particule ionisante étant de l'ordre de 10^{-14} Cb, on peut observer quelques centaines d'impulsions avant de remarquer le moindre effet de charge d'espace. La profondeur de pénétration des particules α étant faible ($\sim 8 \mu$ pour le Po), on peut pratiquement admettre que les charges libres prennent naissance sur la surface irradiée. Suivant le sens du champ électrique appliqué, ce sont ou les électrons ou les trous positifs qui traversent le cristal. La séparation des mouvements de charges positives et négatives peut donc se faire très nettement.

Théoriquement, cette méthode permet la détermination de la mobilité μ ; la durée du front de l'impulsion («rise-time») pour un

champ E est en effet égale au temps de parcours $T = d/\mu E$ des charges dans le cristal d'épaisseur d .

Au moment où ces expériences furent commencées, on s'attendait à trouver une mobilité de l'ordre de celles mesurées pour les semi-conducteurs, soit de 100 à 200 cm²/V. sec. Cependant, nous n'avons jamais pu observer de rise-times supérieurs à 10⁻⁶ sec, limite instrumentale de notre dispositif amplificateur, ni pour le mouvement des électrons ni pour celui des trous positifs; ceci fixe donc un T maximum à 1 μ sec. Pour $d = 0,3$ cm et $E = 1000$ V/cm, il en résulte des mobilités en tout cas supérieures à 300 cm²/V. sec.

Les mobilités mesurées récemment à température ordinaire par PEARLSTEIN et SUTTON¹³⁾ sont beaucoup plus grandes. Ces auteurs trouvent pour deux spécimens de diamant des valeurs de l'ordre de 4000 cm²/V. sec. Le rise-time étant réduit d'autant il est clair qu'il devait échapper à notre observation. La construction d'un amplificateur capable d'une résolution semblable étant hors de nos moyens, nous avons dû renoncer à cette méthode de mesure et, par conséquent, à la détermination isolée de la mobilité.

Cependant il est possible de mesurer le travail d'ionisation et le produit $\mu\tau$ uniquement en observant la variation, avec le champ électrique appliqué entre les électrodes, de l'amplitude des impulsions produites par pénétration d'une particule α dans le cristal.

L'évaluation des résultats à partir des spectres obtenus, peut se faire sur le modèle proposé par HECHT¹⁴⁾ pour l'effet photoélectrique. Ce modèle se fonde sur les hypothèses suivantes:

1° Les charges mobiles sont créées

a) au voisinage immédiat de l'une des deux électrodes parallèles du cristal, ou

b) uniformément entre les électrodes.

Le cas a) s'applique sans modification à la ionisation par particules α , injectées sur une surface-électrode. Comme nous l'avons vu, la pénétration des particules α du Po peut en effet être négligée par rapport à l'épaisseur totale du cristal de 2 à 3 mm.

Le cas b) correspondrait à l'irradiation par des particules qui traversent toute la distance entre les deux électrodes, par exemple des particules β d'énergie suffisante. L'irradiation par radiation γ produit également des électrons énergétiques à l'intérieur du cristal. Dans ce cas, la condition b) n'est pas remplie pour chaque impulsion séparément, mais l'ensemble de leur spectre n'en sera pas très éloigné. Cette interprétation conduit à une formule d'inter-

polarisation adéquate pour le cristal n° 2, tandis que pour le cristal n° 1 nous l'avons trouvée nettement insuffisante.

2° La vitesse de déplacement des charges dans la bande de conduction est donnée par

$$v = \mu \cdot E \quad (1)$$

où la mobilité μ est supposée indépendante du champ électrique. Ceci est admissible tant que $\mu \cdot E \ll v_{th}$, la vitesse thermique des charges libres.

3. Les charges libres sont capturées par des trappes (ou pièges) réparties uniformément dans le cristal. A la condition indiquée sous 2° une charge sera trappée après un temps de vie moyen

$$\tau = \frac{1}{N_p \cdot v_{th} \cdot \sigma} \quad (2)$$

N_p = nombre de pièges par cm^3 , σ = leur section efficace de capture. La loi d'absorption aura la forme $n(t) = n_0 \cdot e^{-t/\tau}$.

Nous en déduisons que la fraction

$$n(x)/n_0 = e^{-x/\delta}$$

des charges initiales parcourent la distance x . Le déplacement moyen vaut

$$\delta = \mu \cdot \tau \cdot E \quad (3)$$

Si l'on désigne par Q_0 la charge produite par ionisation, la charge induite aux électrodes est égale à

$$Q = Q_0 \cdot \frac{1}{d} \cdot \int_0^d e^{-x/\delta} \cdot dx = \frac{Q_0 \cdot \delta}{d} \cdot (1 - e^{-d/\delta})$$

ou

$$Q/Q_0 = \frac{\mu \tau E}{d} \cdot (1 - e^{-d/\mu \tau E}) \quad (4)$$

dans le cas a).

Dans le cas b), des charges sont produites pour tout endroit y compris entre zéro et d , ce qui nécessite deux intégrations pour Q , soit

$$Q = Q_0 \cdot \frac{1}{d^2} \cdot \int_0^d dy \int_y^d e^{-(x-y)/\delta} \cdot dx = \frac{Q_0 \cdot \delta}{d^2} \cdot \int_0^d (1 - e^{-\frac{d-y}{\delta}}) dy$$

donc

$$Q = Q_0 \cdot \frac{\delta}{d} \cdot \left[1 - \frac{\delta}{d} \cdot (1 - e^{-d/\delta}) \right]. \quad (5)$$

Comme on a simultanément mouvement de charges des deux signes, qui ont leur propres caractéristiques, nous enregistrons la charge

$$Q = Q_0^+ \cdot \frac{\delta_+}{d} \cdot \left[1 - \frac{\delta_+}{d} \cdot (1 - e^{-d/\delta_+}) \right] + Q_0^- \cdot \frac{\delta_-}{d} \cdot \left[1 - \frac{\delta_-}{d} \cdot (1 - e^{-d/\delta_-}) \right]. \quad (5a)$$

Nous devons laisser ouverte la possibilité d'une charge mobile positive différente de la charge mobile négative, bien que produite en même temps. Cette fonction contient alors quatre constantes à ajuster, ce qui diminue énormément la précision obtenue. C'est pourquoi nous avons tiré nos résultats pour $\mu\tau$ uniquement à partir des courbes de saturation obtenues par irradiation de particules α , par la méthode a (équ. (4)).

Dans la représentation de Q en fonction de E la pente à l'origine donne directement $\mu\tau/d$ et la valeur asymptotique, Q_0 (voir fig. 8).

2. Contrôle de la reproductibilité.

Pour ces essais, nous avons soumis le cristal à une irradiation permanente par les rayons α du Po à raison de 100 particules α par minute environ. La courbe de saturation a été déterminée le premier, le second, le troisième et le sixième jour. Nous n'avons pas trouvé de variation. Le cristal était ensuite refroidi à la température de la glace carbonique, puis laissé se réchauffer à la température du laboratoire. L'amplitude des impulsions restait la même. Enfin le cristal était traité de même façon, mais avec refroidissement à l'air liquide; dans ce cas les propriétés du cristal avaient changé, à la fois pour le travail d'ionisation apparent et pour le produit $\mu\tau$.

Nous en déduisons que l'irradiation seule, même prolongée, n'altère pas les propriétés du cristal et que les résultats des mesures, exécutées exactement dans les mêmes conditions, sont reproductibles.

Par contre, le refroidissement à la température de l'air liquide semble provoquer un changement permanent du comportement électrique du cristal, dû probablement à une altération de la structure mosaïque.

Pour cette raison, nous avons effectué les mesures à cette température à la fin d'une série seulement.

3. Exemples de courbes de saturation obtenues.

Nous donnons dans les fig. 7 à 10 des exemples caractéristiques de courbes de saturation ajustées aux points expérimentaux sur la base des formules (4) et (5).

On voit que pour la température ordinaire, l'accord entre les points expérimentaux et la *courbe théorique d'interpolation* est en général

très bon aussi bien pour le mouvement des trous positifs que pour celui des électrons, quoique les courbes entre elles puissent différer passablement. Pour les basses températures, nous avons constaté les déviations suivantes :

1° Dans quelques cas, nous n'avons pas pu atteindre de saturation, le champ électrique maximum étant limité par l'isolation des faces du cristal.

2° La plupart des tracés expérimentaux $Q = Q(E)$ pour les électrons et la température de 200° K présentent, après un début normal de la courbe de saturation, une inflexion vers le haut (excès de charge) pour les champs élevés. Nous tenterons de donner une explication de ce phénomène intéressant dans la discussion des résultats.

Il ne peut s'agir ici de présenter toutes les courbes de saturation ; nous en avons déterminé une centaine, constituées au total par plus de mille spectres d'impulsions. Nous choisirons quelques exemples typiques et illustrant bien les faits.

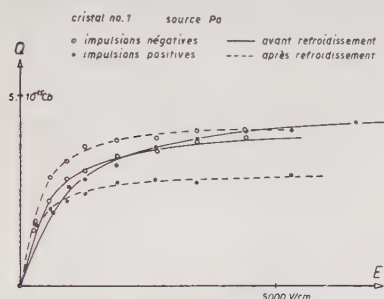


Fig. 7.

Courbes de saturation ; $T = 290^{\circ} \text{K}$.

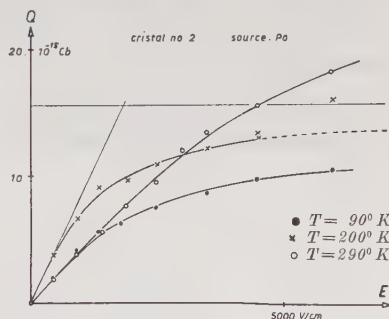


Fig. 8.

Courbes de saturation ; impulsions nég.

La fig. 7 représente quatre courbes de saturation prises toutes à la température ordinaire et obtenues par irradiation du même endroit du cristal par particules α . Ces courbes correspondent à des mesures faites avant et après refroidissement du cristal à la température de l'air liquide. La variation est nette : l'amplitude des impulsions positives a diminué et la saturation s'obtient beaucoup plus vite, ce qui correspond à une augmentation du travail d'ionisation apparent et du produit $\mu\tau$. Par contre, l'amplitude des impulsions négatives a légèrement augmenté, tandis que le $\mu\tau$ a diminué. Les variations de $\mu\tau$ sont assez prononcées, tandis que celles du travail d'ionisation sont relativement faibles ; elles se produisent dans les deux sens également, comme le montrent les tableaux.

La fig. 8 donne trois courbes de saturation pour impulsions négatives, prises au même endroit du cristal n° 2 et à différentes températures. Ici, la charge libérée diminue avec la température, ce qui correspond à une augmentation du travail d'ionisation. La saturation est atteinte plus vite, indiquant également une augmentation de $\mu\tau$. Ce comportement n'est d'ailleurs pas général et comme on peut le voir à partir des tableaux numériques, le cristal n° 1 présente un effet différent.

Les deux derniers points du tracé expérimental pour la température de la glace carbonique tombent au-dessus de la courbe théorique dans le sens indiqué, page 263. Sur cette même courbe est indiquée à titre d'exemple la manière d'obtenir les valeurs du travail d'ionisation J et de $\mu\tau$ à partir de la courbe théorique d'interpolation. La valeur limite de $15,6 \cdot 10^{-15}$ Cb soit 97500 charges électroniques supposées libérées par la particule α incidente, correspond à une énergie initiale de 5,3 MeV; il s'ensuit pour l'énergie moyenne requise par électron $J = 54,5$ eV. L'abscisse du point d'intersection de la tangente à l'origine et de l'asymptote donnant l'unité de la courbe normalisée, cela signifie qu'en ce point $\mu\tau E^*/d = 1$.

Nous trouvons $E^* = 1850$ V/cm; avec $d = 0,2$ cm il s'ensuit la valeur $\mu\tau = 10,8 \cdot 10^{-5}$ cm²/V.

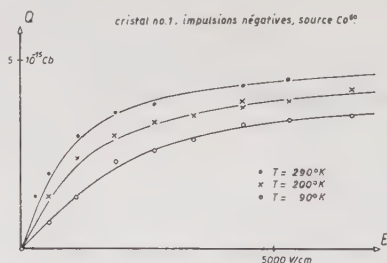


Fig. 9.

Courbes de saturation; radiation γ .

Les courbes de saturation de la fig. 9 ont été obtenues en irradiant le cristal n° 1 par les γ . Nous n'en avons pas tiré de résultats numériques, vu la complexité de la fonction qu'elles représentent. Cependant l'emploi des rayons γ possède l'avantage, vis-à-vis de l'irradiation par particules α , de fournir une sorte de moyenne sur tout le cristal, ce qui nous permet un contrôle qualitatif des autres mesures.

Les courbes de la fig. 10 se rapportent à l'irradiation du cristal n° 1 par les α de différentes énergies (source de Po située à distance variable du cristal). En reportant la valeur limite de la charge en fonction de l'énergie, on obtient le graphique fig. 5 (p. 255).

Enfin, comme dernier exemple, la fig. 11 donne les courbes de saturation obtenues par irradiations du cristal n° 2 par rayons γ de différentes énergies (préparations de Cu^{64} , Co^{60} , Ra et Th). Les courbes relatives aux γ du Ra et du Th se confondent, ce qui signifie qu'une augmentation de l'énergie ne change plus l'amplitude de la charge produite; c'est l'effet discuté plus haut (voir p. 257).

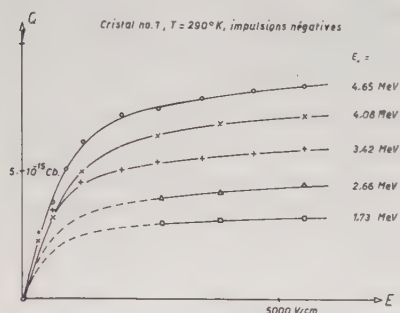


Fig. 10.

Courbes de saturation; différentes énergies E_{α} .

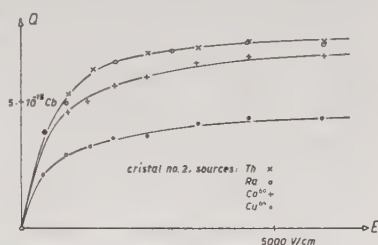


Fig. 11.

Courbes de saturation; différentes énergies E_{γ} .

4. Résultats numériques.

Les résultats numériques pour J et $\mu\tau$ déduits des courbes de saturation sont rassemblés dans les tableaux II et III.

Les limites d'erreur (valeurs moyennes) estimées à partir de la marge d'ajustement de la fonction d'interpolation sont pour J de $\pm 2,5\%$ env. et pour $\mu\tau$ de $\pm 7\%$.

Nous avons effectué 8 séries de mesures. Une série complète comporte en général la détermination d'une courbe de saturation pour chaque polarité à la température ordinaire, puis à celle de la glace carbonique (200° K environ), suivie d'une mesure de contrôle à la température du laboratoire. Ensuite, même cycle pour la température de l'air liquide (90° K), la dernière mesure à température ordinaire nous permettant de contrôler les changements internes du cristal produits par le refroidissement.

Les résultats de la série 1, provisoire, ont déjà été publiés¹⁵⁾. Nous nous sommes aperçus au cours des expériences ultérieures que le nombre de points expérimentaux n'était pas suffisant, aux

champs faibles pour assurer une précision convenable de la détermination de $\mu\tau$. Les résultats de cette mesure ne figurent donc ici qu'à titre rétrospectif.

La série 7 contient un nombre double de mesures, toutes effectuées au même endroit du cristal n° 2.

Les séries 6 et 8 ont servi à la détermination de la charge libérée en fonction de l'énergie, dont les résultats ont été représentés graphiquement dans les fig. 8 et 9.

A titre de comparaison nous avons adjoint aux tableaux les valeurs indiquées par d'autres auteurs et déterminées pour la température ambiante seulement. La valeur du travail d'ionisation calculée d'après les indications expérimentales de AHEARN¹⁶⁾ est la plus basse de celles indiquées dans la littérature.

Le mouvement des trous positifs à 90° K n'a pas donné d'impulsions d'amplitude suffisante pour permettre une courbe de saturation; nous n'avons pu relever de spectres que pour quelques valeurs élevées du champ électrique. Ceci suffit tout de même à une estimation des limites de J et $\mu\tau$.

Tableau II.

Résultats obtenus pour $J_{\text{app.}} = E_{\alpha, \gamma} / (Q_{\text{mes.}}/e)$
Valeurs exprimées en eV.

Série cristal rad.			290° K		200° K		90° K	
			-	+	-	+	-	+
1	1	α	89	89			(57)	> 670
2	1	α	163	144	80	115	129	> 450
			99	130				
3	1	α	163	212	102	270	212	—
5	1	α	202	180	77	127	113	> 1000
			155	170				
6	1	α	84	124				
7	2	α	26,5	140	54,5	197	64	> 450
			29	164	54,5	160	55	
				155				
8	2	α	95	130				
4	2	γ		12*				
AHEARN ¹⁶⁾		α	10					
McKAY ⁶⁾		β	~10	~10				

(-), électrons; (+), trous positifs. Erreur sur J : $\sim \pm 2,5\%$ en moyenne;

* Valeur relative à l'électron Compton.

Tableau III.

Résultats obtenus pour $(\mu\tau)$.
Valeurs exprimées en $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$.

Série cristal rad.			290° K		200° K		90° K	
			-	+	-	+	-	+
1	1	α	(13,2)	(10)			(11,7)	< 7,5
2	1	α	70	64	14	8,2	19	< 5
			43	71				
3	1	α	64	64	13,3	14,5	32	—
5	1	α	38	22,5	12,8	3,6	10	< 5
			53	64				
7	2	α	2,7	5,7	10,8	4,3	6,7	< 4
			3,6	6,2	10,8	8,9	6,0	
				6,4				
McKAY ³⁾	β		0,83	0,46				
PEARLSTEIN	α		3,5	3,8				
et SUTTON ¹³⁾			2,1					

(-) électrons; (+) trous positifs. Erreur sur $\mu\tau$: $\sim 7\%$ en moyenne.

5. Discussion.

Si nous comparons entre eux les résultats obtenus, nous distinguons, malgré les fluctuations entre les différentes séries, quelques lignes générales du comportement des deux cristaux.

La comparaison des valeurs du travail d'ionisation apparent montre que celui relatif aux trous positifs est à peu près le même pour les deux cristaux, tandis que celui se rapportant aux électrons est nettement inférieur pour le second cristal. Les variations en fonction de la température ne sont pas très prononcées et ne présentent pas de régularité relevante.

Les variations entre les différentes mesures d'une série ainsi qu'entre les séries elles-mêmes ne sont pas négligeables. Les premières font ressortir l'influence du refroidissement à l'air liquide, tandis que les secondes montrent que le comportement du cristal varie sensiblement d'un endroit à l'autre de la surface. Il semble difficile de donner une explication satisfaisante de ce comportement.

a) Travail apparent d'ionisation.

On constate tout d'abord que la plupart des valeurs obtenues pour J avec les particules α dépasse de loin les grandeurs équivalentes caractérisant d'autres types d'excitation (par impact d'élec-

trons⁶⁾⁹⁾ ou irradiation lumineuse⁷⁾) et qui livrent une valeur voisine de 7 à 10 eV. Il s'agit donc bien d'une valeur apparente qui est influencée par le rendement du mécanisme de libération des charges.

Plusieurs effets sont susceptibles d'augmenter la valeur de J :

1° Une partie de l'énergie de la particule incidente est transformée directement en énergie d'excitation thermique du réseau. Ceci peut expliquer la valeur élevée du travail d'ionisation apparent, mais non, semble-t-il, la différence entre les deux cristaux.

2° Un effet qui peut avoir également son importance est la formation possible d'excitons. Aux températures élevées il est probable que ceux-ci seront dissociés en une paire ionisée en un temps court vis-à-vis de la durée d'impulsion et leur existence passagère n'aura pas d'influence sur le phénomène. Si on admet comme KLICK et MAURER⁸⁾ pour l'exciton une énergie d'activation pour la dissociation thermique $E_a = 0,2$ eV pour le diamant et une durée de vie $\tau = \tau_0 \cdot e^{E_a/kT}$ avec $\tau_0 = 10^{-12}$ sec, on a pour $T = 300^\circ$ K la valeur $\tau = 2,10^{-9}$ sec. Aux températures plus basses la vie moyenne est plus grande que la durée de l'impulsion ($\tau(200^\circ \text{ K}) \simeq 10^{-7}$ sec, $\tau(100^\circ \text{ K}) \simeq 10^{-2}$ sec) et la charge participe à un degré moindre sinon nul à la formation de cette dernière.

Cet effet pourrait expliquer pour une part le cas du cristal n° 2 où l'on constate effectivement une augmentation progressive du travail d'ionisation J vers les basses températures.

3° Une recombinaison immédiate d'une partie des charges produites, qui serait indépendante du champ électrique appliqué. Elle interviendra surtout lors de l'irradiation par particules α , pour laquelle la densité locale des charges est la plus élevée. Cette recombinaison peut être influencée par la structure du cristal en surface et par la répartition et la densité des trappes, ce qui expliquerait les variations constatées entre différents points d'un cristal et entre les spécimens.

Cette hypothèse permet en outre de rendre compte du fait que la recombinaison dépend de la température et de la nature des charges en mouvement.

4° Par contre, l'existence d'une couche de surface «non sensible», c'est-à-dire qui serait traversée avec perte d'énergie par la particule incidente, mais sans production de charges mobiles, doit être exclue, puisque la droite de proportionnalité observée entre l'énergie de la particule α et la charge recueillie passe par l'origine.

b) Mobilité et capture des charges.

Les résultats obtenus pour $\mu\tau$ nous donnent des indications sur l'état interne du cristal. Rappelons la relation (2) pour la vie moyenne τ de la charge en mouvement

$$\tau = \frac{1}{N_p \cdot v_{th} \cdot \sigma} \quad (2)$$

N_p = nombre de pièges par cm^3 , σ = section efficace de capture et

v_{th} = vitesse thermique des charges en mouvement $\simeq \sqrt{\frac{8kT}{\pi m^*}}$

Une grande valeur pour $\mu\tau$ correspond à une mobilité élevée ou à une concentration faible de pièges. En admettant la valeur $\mu = 4000 \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{sec}$ à température normale et une section efficace de capture $\sigma = 10^{-15} \text{ cm}^2$, on obtient, à partir de la valeur moyenne mesurée pour le cristal n° 2: $\mu\tau = 3,2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$, une densité de pièges $N_p \simeq 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Le cristal n° 1 serait caractérisé par une densité $N_p \simeq 6 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Celle-ci ne varie pas seulement d'un spécimen à l'autre, mais également d'un endroit à l'autre, si la répartition n'est pas homogène.

Les résultats pour $\mu\tau$ indiquent de nouveau une différence marquée entre les deux cristaux pour le mouvement des deux types de charges. Cependant nous constatons pour les deux spécimens une diminution prononcée du $\mu\tau$ des trous positifs vers les basses températures. C'est là un phénomène qu'on peut prévoir; le mouvement des trous positifs se fait à travers une série de barrières de potentiel et il est clair qu'il sera défavorisé aux basses températures.

Les impulsions négatives sont dues au déplacement des électrons dans la bande de conduction vide. La mobilité électronique est liée au libre parcours moyen l entre deux collisions par la relation classique du gaz non dégénéré:

$$\mu = \frac{4}{3} \cdot \frac{e \cdot l}{\sqrt{2\pi m^* kT}} \quad (6)$$

Le libre parcours est donné d'une part par les collisions de l'électron avec les atomes du réseau, mais dépend également des collisions avec les défauts cristallins localisés, sous forme d'ions d'impureté. SEITZ¹⁷⁾ donne pour la première composante dans les cristaux de valence l'expression

$$l_r = \frac{9\pi}{4} \cdot \frac{h^4 c^2 \varrho}{C^2 m^{*2} k} \cdot \frac{1}{T} \quad (7)$$

c = vitesse du son dans le cristal, ϱ = densité, k = constante de BOLZMANN, m^* = masse effective de l'électron, qu'on prendra,

faute de renseignements suffisants, égale à la masse véritable; C est une «énergie d'interaction» dont la valeur est difficile à estimer et qui définit le couplage entre l'électron et les modes acoustiques de vibration du réseau.

Le parcours moyen relatif aux collisions d'un électron avec les ions étrangers a été calculé par CONWELL et WEISSKOPF¹⁸⁾:

$$l_i = \frac{12}{\pi} \cdot \frac{\varepsilon^2 \cdot k^2}{e^4 \cdot N_i} \cdot \frac{T^2}{\ln G} \quad \text{avec} \quad G = 1 + \left(\frac{6 \varepsilon d \cdot kT}{e^2} \right)^2 \quad (8)$$

ε = constante diélectrique, N_i = concentration des centres d'impureté en cm^{-3} et $2d$ = distance moyenne entre deux centres voisins. Cette expression est proportionnelle à T^2 , si nous négligeons la variation lente du terme $\ln G$.

Le libre parcours effectif l est donné par la relation

$$\frac{1}{l} = \frac{1}{l_r} + \frac{1}{l_i}. \quad (9)$$

En tenant compte des expressions (6), (7), (8) et (9) nous constatons que la mobilité μ peut être représentée par une fonction du type

$$\frac{1}{\mu} = \beta_r \cdot T^{+3/2} + \beta_i \cdot T^{-3/2}. \quad (10)$$

Nous pouvons à titre d'essai faire l'hypothèse que le nombre de trappes et leur section efficace de capture ne dépendent pas de la température; nous déduisons alors à partir de (2) et de (10) que

$$\frac{1}{\mu\tau} = B_r \cdot T^2 + B_i \cdot \frac{1}{T}. \quad (11)$$

Dans la fig. 12 nous avons reporté les valeurs obtenues pour $1/\mu\tau$

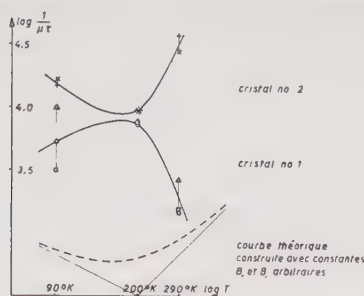


Fig. 12.

$1/\mu\tau$ en fonction de la température.

en fonction de la température en échelle doublement logarithmique. Nous voyons que dans aucun des cas, les points ne semblent vouloir

suivre la forme de la courbe théorique construite pour des valeurs de B_r et B_i arbitraires suivant l'équation (11). Pour le cristal n° 2 on pourrait à la rigueur parler d'un accord relatif, tandis que pour le premier, la courbure se produit dans le sens opposé.

Nous devons donc admettre que le nombre de pièges et éventuellement leur section de capture σ dépendent eux-mêmes de la température, quoiqu'il soit impossible de déterminer à partir de nos résultats quel est le type de cette variation. Ceci nous paraît plausible, puisque le refroidissement à l'air liquide produit même un changement permanent de $\mu\tau$. En effet, un piège ne résulte pas uniquement d'un atome ou ion d'impureté, mais peut également provenir d'un défaut d'ordre du réseau, lacune ou atome interstitiel liés par exemple à des dislocations.

Le cristal n° 2 semble présenter des impuretés cristallines dont les effets varient avec la température sans masquer l'allure générale de $\mu\tau$ prévue par le modèle théorique. Il n'en est pas de même pour le cristal n° 1, où les défauts semblent être en majorité de nature différente, failles et dislocations probablement, et soumis à une toute autre dépendance de la température. Le fait que le spécimen 2 est fluorescent tandis que le spécimen 1 ne l'est que très faiblement tendrait à appuyer cette hypothèse. Un test par irradiation γ (scintillations détectées par tube RCA 5819) confirme ce point de vue: le spécimen n° 2 donne en effet un résultat nettement positif, le n° 1 nettement négatif*).

Nous pensons qu'une discussion un peu plus détaillée sur un modèle de cristal homogène ne se justifie que dans le cas du cristal n° 2.

En admettant une concentration des centres d'impureté du même ordre de grandeur que celle obtenue pour les trappes soit 10^{16} cm^{-3} , les libres parcours l_r et l_i peuvent se calculer aux différentes températures:

Tableau IV.

Libres parcours pour $N_i = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

	$l_r(C = 30,6 \text{ eV}^*)$	$l_r(C = 6 \text{ eV}^{**})$	l_i
$T = 290^\circ \text{ K}$	$0,12 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$	$3,1 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$	$30,1 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$
$T = 200^\circ \text{ K}$	$0,17 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$	$4,5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$	$15,4 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$
$T = 90^\circ \text{ K}$	$0,38 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$	$10,0 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$	$4,1 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$

*) Valeur proposée par SEITZ¹⁷⁾.**) Valeur calculée d'après $\mu = 4000 \text{ cm}^2/\text{V. sec.}$

*) Ce résultat intéressant fera l'objet d'investigations ultérieures.

On voit que

- a) pour 290° K de toute façon $l_i \ll l_r$, donc $1/\mu\tau \simeq B_r T^2$;
- b) pour les basses températures, l_i diminue d'un facteur 8 environ, l_r augmente d'un facteur 3; les collisions avec les impuretés sont donc nettement favorisées par rapport à la température ordinaire. C'est là un résultat dont nous ferons usage ultérieurement.

L'existence éventuelle des trois phénomènes suivants pourrait apporter des modifications à notre interprétation:

1^o Une variation de la recombinaison immédiate des charges libérées en fonction du champ électrique appliqué. Dans ces conditions la charge mobile initiale ne serait plus constante, ce qui modifierait la forme de la courbe de saturation. Cependant, une telle modification n'a pas été observée en dehors de la précision de la mesure.

2^o Les électrons capturés dans les pièges pourraient en ressortir pendant la formation de l'impulsion, ce qui entraînerait une modification des paramètres intervenant dans la loi théorique fondée sur le modèle de НЕЧТ. Nous pensons qu'un tel processus ne se manifeste pas de façon décelable pour les trois raisons suivantes:

- a) La durée de vie dans un piège a été calculée par MOTT et GURNEY¹⁹⁾ qui trouvent une expression de la forme

$$\tau = B \cdot e^{E/kT}$$

où $B \sim 10^{-11}$ et E = profondeur de la trappe au-dessous de la bande de conduction.

A la température ordinaire et pour $E \geq 0,5$ eV on trouve $\tau \geq 4 \cdot 10^{-3}$ sec. Comme il est peu probable que la profondeur des trappes du diamant soit sensiblement inférieure à cette valeur, les électrons relâchés n'interviendront pas.

- b) Expérimentalement la forme des impulsions observées atteignait son maximum dans un intervalle inférieur à 5 μ sec. à partir de l'origine, résultat qui conduit à la même conclusion que ci-dessus.

- c) Enfin, d'après MCKAY⁶⁾, à température ordinaire, 10% environ seulement des électrons trappés sont relâchés après 10 à 20 μ sec, et pour les trous positifs pratiquement aucun en 10^{-4} sec.

3^o Le troisième phénomène perturbateur serait lié à l'existence de dislocations (structure mosaïque) à l'intérieur du cristal, l'interface correspondant à une concentration locale de pièges pour les charges en mouvement. Il serait ainsi possible d'expliquer la variation erratique du travail d'ionisation apparent et de $\mu\tau$ en admettant des failles à des endroits différents. La forme de la courbe de saturation n'en serait pas modifiée, mais bien ses paramètres, ce

qui entraînerait l'impossibilité de tirer des résultats numériques de nos mesures, la position de ces failles ne pouvant pas être déterminée. Un indice en faveur d'une structure inhomogène est fourni également par les constatations de la page 257. Ce phénomène, s'il existe, nous paraît devoir affecter surtout les résultats numériques relatifs au cristal n° 1 en même temps qu'il expliquerait en partie son comportement anormal:

Le calcul du déplacement moyen des électrons (Schubweg) $\delta = \mu\tau \cdot E$ donne les valeurs suivantes pour un champ $E \simeq 1000$ V/cm

cristal n° 1: $\delta \simeq 5$ mm

cristal n° 2: $\delta \simeq 0,3$ mm

Comme la présence de dislocations (failles) est probable — l'ordre de grandeur des «zones sensibles» apparaissant comme étant de l'ordre de 0,5 mm (voir page 258) — il en découle que les résultats numériques pour le cristal n° 1 devraient être révisés en tenant compte de la limitation du parcours effectif des charges mobiles. Les valeurs de $\mu\tau$ et celles de J seraient ainsi diminué d'un facteur qu'on peut grossièrement estimer à $\sim 5/0,5 = 10$ et ainsi rendues voisines de celles valables pour le cristal n° 2.

c) Effet de multiplication.

Il nous reste à discuter le phénomène mis en évidence par l'inflexion vers le haut de certaines courbes de saturation relatives au mouvement des électrons et observé le plus nettement à 200° K (voir page 263 et fig. 8). Il s'agit ici probablement du phénomène observé déjà par McKAY⁹⁾ pour des champs de 10000 V/cm à la température ambiante*). Nous avons constaté les faits suivants:

A température normale cet effet n'a été mis en évidence sur aucune des courbes relevées. Cependant, nos champs électriques étant inférieurs à ceux utilisés par McKAY, il n'est pas exclu qu'il se produise également pour nos cristaux.

A la température de la glace carbonique, nous avons trouvé cette déviation pour cinq sur sept des courbes relevées pour le mouvement des électrons, tandis que le mouvement des trous positifs donnait la courbe de saturation normale. Les déviations se produisent pour des champs électriques de 5000 à 7000 V/cm pour les deux spécimens de diamant.

*) Le phénomène mis en évidence dans CdS par KALLMANN et WARMINSKY²⁰⁾ est analogue au courant photoélectrique secondaire et est certainement différent de celui qui nous occupe.

A la température de l'air liquide, le phénomène change d'aspect: De la distribution continue commencement à se détacher, vers le haut, des groupes d'impulsions (marquées par les flèches dans la fig. 13) qui, pour des champs croissants et à partir de 2000 V/cm déjà, s'éloignent de plus en plus du gros du spectre.

Il est difficile de comparer nos mesures et celles de McKAY; il s'agit en effet de conditions expérimentales différentes ainsi que de différents cristaux. Cependant il ressort de nos observations de façon nette que l'abaissement de la température favorise cet effet.

L'explication du phénomène, proposée par le même auteur, paraît pourtant insuffisante. Il ne semble guère possible qu'il puisse y avoir multiplication électronique par collisions entre les électrons de conduction et le réseau cristallin pour les champs électriques

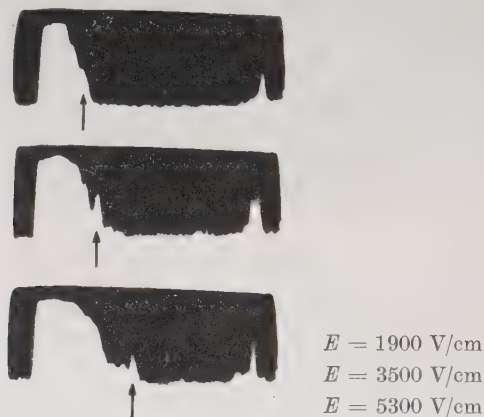


Fig. 13.

Spectres d'impulsions (90° K).

Les groupes d'impulsions se détachant du spectre normal sont marqués par des flèches.

appliqués, car, d'après SEITZ²¹), le champ de rupture dans le réseau de diamant parfait est de l'ordre de 10^6 V/cm.

D'ailleurs une estimation fondée sur un processus en avalanche, semblable à celui admis pour les gaz et décrit par la formule de multiplication

$$Q = Q_0 \cdot 2^{\frac{d}{l}} \cdot e^{-A_i E l} \quad (12)$$

montre que, pour l'énergie d'ionisation $A_i \simeq 10$ eV caractéristique du réseau, aucun effet détectable n'est possible, même pour un libre parcours moyen l aussi grand que $2 \cdot 10^{-4}$ cm. (La distance d

entre les électrodes intervient explicitement dans cette estimation, mais comme nos cristaux ont des épaisseurs voisines, la valeur choisie pour d n'est pas critique.)

Nous suggérons plutôt, en nous appuyant sur les constatations déjà faites en page 272, de considérer la multiplication comme imputable aux collisions ionisantes des électrons avec les centres d'impuretés*). En effet l'énergie d'ionisation de tels centres est certainement au plus égale à 1 eV, c'est-à-dire très inférieure à celle caractéristique du réseau. D'autre part, la comparaison des valeurs de l_r et l_i données dans le tableau IV pour les températures décroissantes, montre que l'action de freinage du réseau diminue alors que la fréquence des collisions avec les impuretés croît rapidement. Le libre parcours moyen relatif à ces collisions conserve pourtant, aux températures voisines de 100° K, une valeur suffisante pour assurer à l'électron un gain d'énergie susceptible de conduire à un effet multiplicatif décelable. A l'aide de la formule (12), avec $A_i = 0,5$ eV et en admettant $Q = 2 Q_0$ comme effet multiplicatif, on obtient le résultat suivant ($T \sim 100^\circ$ K):

Pour un champ $E = 6000$ V/cm, la multiplication observée serait possible pour un libre parcours moyen $l_i \geq 8 \cdot 10^{-6}$ cm; ceci impose une densité de centres ionisables $N_i \leq 8 \cdot 10^{17}$ cm⁻³. Ce chiffre est supérieur à la densité des trappes trouvée égale à 10^{16} cm⁻³ (cristal n° 2) et qu'il est plausible de considérer comme voisine de la concentration des impuretés de collision. Nous pouvons voir dans ce résultat une confirmation de l'interprétation proposée.

En ce qui concerne les trous positifs, leur mobilité étant déjà fortement diminuée aux températures inférieures à 200° K, il leur est en fait impossible de produire un effet multiplicatif, en accord avec nos observations.

On peut se demander si, comme le suggère SEITZ²¹⁾ pour expliquer certains phénomènes de pré-disruption, un processus de dissociation d'excitons par le champ électrique pourrait jouer un rôle dans l'effet de multiplication que nous avons observé. Effectivement, si la durée de vie des excitons formés par l'impact de la particule ionisante et par les électrons accélérés eux-mêmes est réduite par le champ à une valeur inférieure à la durée de l'impulsion, on observera au-dessus d'un champ critique une augmentation de l'amplitude (ceci pour des températures où la dissociation ther-

*) Note à la correction: Un effet de collisions sur des centres d'impuretés neutres existe probablement. Les expressions exactes pour cet effet, données récemment par C. ERGINSOY (Phys. Rev. **79**, 1013, (1950)), montrent pourtant qu'il reste inférieur à 1% de celui dû aux centres ionisés, à concentration égale.

mique est retardée). Ce champ critique devrait coïncider dans notre cas avec la valeur de 5000 V/cm.

Il apparaît peu probable que pour une valeur aussi faible un exciton situé dans son état fondamental à $\varepsilon = 0,2$ eV au-dessous de la bande de conduction puisse être dissocié: Le calcul de l'effet Stark pour un champ intérieur effectif $F = (\kappa_0 + 2) E/3 = 6,2 \cdot 5 \cdot 10^3$ soit ~ 30000 V/cm indique que le niveau n'est relevé que de $3 \cdot 10^{-3}$ eV environ. D'autre part, en calculant la probabilité pour l'exciton d'un effet de tunnel à travers la barrière de potentiel $U(x) = e^2/\kappa x + eF$ résultant du champ F , soit approximativement

$$\nu \cdot e^{-2 \sqrt{\frac{m_0}{\hbar^2}} \int_{x_1}^{x_2} \sqrt{|U - \varepsilon|} dx}$$

avec $\nu \sim 10^{14}$, on trouve 10^{-36} sec $^{-1}$!

Conclusions.

Il nous semble légitime de tirer des investigations précédentes les conclusions suivantes:

1^o Parmi les cristaux de diamant industriels, il existe dans une proportion de 2 à 3% des spécimens pour lesquels la mobilité électronique μ à l'intérieur du cristal ou plus exactement son produit par la durée de vie τ d'un électron dans la bande de conduction est suffisamment grand pour permettre l'observation d'impulsions d'ionisation avec des champs relativement faibles de l'ordre de 1000 V/cm.

La mobilité des trous positifs est du même ordre de grandeur à température ordinaire.

Le fait que ces cristaux soient fluorescents ou non en lumière ultra-violette ne semble pas avoir d'importance pour la propriété en question, mais bien leur transparence dans l'ultra-violet au-dessous de 3000 Å.

2^o La charge maxima recueillie lors de l'irradiation par particules α est proportionnelle à l'énergie de ces particules. Le travail d'ionisation apparent varie notablement entre différents points d'impact sur la surface, de même qu'entre les spécimens, la valeur minima étant de 25 eV environ.

L'influence d'impuretés et de dislocations, parmi d'autres facteurs, est probablement déterminante, mais un effet de surface consistant en une perte d'énergie dans une couche superficielle «non-sensible» semble exclu.

Lors de l'irradiation par rayons γ , la linéarité entre l'énergie maxima des électrons Compton et la charge maxima recueillie dis-

paraît aussitôt que l'énergie dépasse 0,5 MeV. Ce défaut de proportionnalité ne peut s'expliquer que par l'existence d'une structure interne limitant l'étendue sensible à des zones de dimensions inférieures à celles du cristal et de l'ordre de 0,5 mm. Cet effet a une influence sur l'efficacité de détection pour les γ qui atteint 30% de la valeur théorique. Dans le domaine de proportionnalité le travail d'ionisation apparent pour les γ est de 18 eV (12 eV pour les électrons Compton).

3° Il apparaît que deux types au moins de défauts cristallins sont nécessaires pour caractériser le comportement des cristaux:

a) des centres d'impuretés pouvant agir comme centres luminescents;

b) des défauts liés aux failles et dislocations du réseau.

Le premier cristal étudié (n° 1) comporte probablement une majorité de défauts du type *b*, le second (n° 2) au contraire en prépondérance des défauts du type *a*.

Cette distinction entre types *a* et types *b* est supportée par le fait que le cristal n° 2 est fluorescent en lumière ultra-violette et également par irradiation des γ (scintillations) tandis que le n° 1 ne l'est pas.

4° De l'effet de température sur la valeur observée pour $\mu\tau$ on est tenté de conclure que la mobilité électronique est déterminée à la fois par les collisions avec le réseau et par les collisions avec les centres d'impuretés, ce qui donne pour $\mu\tau$ une loi théorique de variation formée de deux termes en T^2 et T^{-1} . Cependant le comportement expérimental est notablement modifié par l'influence de la variation de température sur la concentration des pièges et leur efficacité ($\tau \sim 1/N_p\sigma$).

Alors que pour les deux spécimens étudiés la diminution de mobilité des trous positifs va en parallèle et est très accentuée vers les basses températures, le mouvement des électrons présente des comportements divergents qui pensons-nous sont directement liés à la nature de leurs défauts cristallins prédominants:

Pour le cristal n° 2 caractérisé par les défauts du type *a*, la variation de $N_p\sigma$ avec T est suffisamment faible et monotone pour ne pas masquer entièrement la loi de variation présumée. Pour le cristal n° 1 à prédominance de défauts du type *b*, cette variation est au contraire importante (influence de la contraction thermique sur la structure mosaïque) et altère totalement la loi de mobilité valable pour un cristal homogène.

5° Le phénomène de multiplication électronique (prédisruption) observé aux températures inférieures à 200° K et pour des champs

aussi faibles que 5000 V/cm ne peut raisonnablement s'expliquer que par l'ionisation de centres d'impuretés (en nombre voisin de 10^{16} cm^{-3}) par les électrons accélérés. Une contribution éventuelle d'excitons dissociés par le champ est exclue.

Institut de Physique de l'Université.

Bibliographie.

- 1) E. D. WOOLRIDGE, A. J. AHEARN et J. A. BURTON, *Phys. Rev.* **71**, 913 (1947).
 - 2) P. J. VAN HEERDEN, *The Crystal Counter*, Diss. Utrecht 1945.
 - 3) R. HOFSTADTER, *Nucleonics* **4**, fasc. 4 et 5, 1949.
 - 4) R. K. WILLARDSON et G. C. DANIELSON, *Phys. Rev.* **77**, 300 (1950).
 - 5) G. P. FREEMAN et H. A. VAN DER VELDEN, *Physica* **16**, 486 et 493 (1950).
 - 6) K. G. MCKAY, *Phys. Rev.* **77**, 816 (1950).
 - 7) v. p. ex. B. GUDDEN et R. POHL, *Zs. f. Physik* **17**, 331 (1923).
 - 8) C. C. KLICK et R. J. MAURER, *Phys. Rev.* **81**, 124 (1951).
 - 9) K. G. MCKAY, *Phys. Rev.* **74**, 1606 (1948).
 - 10) R. HOFSTADTER, *Phys. Rev.* **73**, 631 (1948).
 - 11) H. FRIEDMANN, L. S. BIRKS et H. P. GAUVIN, *Phys. Rev.* **73**, 186 (1948).
 - 12) M. S. LIVINGSTONE et H. A. BETHE, *Rev. Mod. Phys.* **9**, 266 (1937).
 - 13) E. A. PEARLSTEIN et R. B. SUTTON, *Phys. Rev.* **79**, 907 (1950).
 - 14) K. HECHT, *Zs. f. Physik* **77**, 235 (1932).
 - 15) H. ESS et J. ROSSEL, *Helv. Phys. Acta* **23**, 484 (1950).
 - 16) A. J. AHEARN, *Phys. Rev.* **73**, 1113 (1948).
 - 17) F. SEITZ, *Phys. Rev.* **73**, 549 (1948).
 - 18) E. CONWELL et V. F. WEISSKOPF, *Phys. Rev.* **77**, 388 (1950).
 - 19) MOTT et GURNEY, *Electronic processes in ionic crystals* (p. 108), Oxford 1950.
 - 20) H. KALLMANN und R. WARMINSKY, *Ann. der Phys.* **4**, 69, (1948).
 - 21) F. SEITZ, *Phys. Rev.* **76**, 1376 (1949).
-

